

界面羟基对碳纳米管摩擦行为和能量耗散的影响

王世伟 朱朋哲 李瑞

Influences of hydroxyl groups on friction behavior and energy dissipation of carbon nanotube

Wang Shi-Wei Zhu Peng-Zhe Li Rui

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 67, 076101 (2018) DOI: 10.7498/aps.67.20180311

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.67.20180311>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2018/V67/I7>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

石墨烯碳纳米管复合结构渗透特性的分子动力学研究

Molecular dynamics study on permeability of water in graphene-carbon nanotube hybrid structure

物理学报.2018, 67(5): 056102 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.67.20172424>

界面接枝羟基对碳纳米管运动和摩擦行为影响的分子动力学模拟

Influence of hydroxyls at interfaces on motion and friction of carbon nanotube by molecular dynamics simulation

物理学报.2017, 66(4): 046101 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.046101>

通量可控的双壁碳纳米管水分子泵

Flux controllable pumping of water molecules in a double-walled carbon nanotube

物理学报.2015, 64(11): 116101 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.116101>

单壁碳纳米管膜及其三聚氰胺甲醛树脂复合材料的光电特性

Opto-electronic properties of the single-walled carbon nanotube film and melamine formaldehyde resin composite

物理学报.2014, 63(10): 106101 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.106101>

缺陷对碳纳米管摩擦与运动行为的影响

Influence of defects on friction and motion of carbon nanotube

物理学报.2014, 63(5): 056101 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.056101>

界面羟基对碳纳米管摩擦行为和能量耗散的影响*

王世伟¹⁾ 朱朋哲²⁾ 李瑞^{1)†}

1) (北京科技大学机械工程学院, 北京 100083)

2) (北京交通大学机械与电子控制工程学院, 北京 100044)

(2018年2月8日收到; 2018年3月15日收到修改稿)

本文采用分子动力学模拟研究了羟基对碳纳米管摩擦和能量耗散方式的影响. 研究表明: 由于界面间氢键的形成, 碳纳米管所受的平均摩擦力明显增大; 随着羟基比例的改变, 界面间氢键的数量与摩擦力的变化趋势一致; 碳纳米管的手性角对摩擦力有一定的影响, 扶手椅型碳纳米管所受的摩擦力比其他类型的碳纳米管的大; 直径对摩擦力的影响较大, 直径越大界面间的摩擦力越大, 其原因是大直径的碳纳米管底部变平导致界面接触面积增大; 界面接枝羟基后, 体系的声子态密度中出现羟基的振动峰; 随羟基比例的增加, 羟基的振动在能量耗散中起到更为重要的作用, 当碳纳米管和硅基底的羟基比例为10%/20%时, 体系能量耗散的主要途径由碳纳米管和硅基底的振动转变为羟基的振动.

关键词: 碳纳米管, 羟基, 摩擦, 能量耗散**PACS:** 61.48.De, 68.35.Af, 63.22.-m, 02.70.Ns**DOI:** 10.7498/aps.67.20180311

1 引言

碳纳米管^[1]由于具有优异的电学、力学和热学性能, 被期望应用于纳米器件和纳机电系统中^[2,3]. 由于表面界面效应, 纳米尺度下摩擦和能量耗散更为显著, 这引起了研究者的重视. 碳纳米管在制备和化学改性过程中, 表面通常带有多种基团, 这些表面基团对其纳米尺度摩擦特性均存在重要影响. 由于碳纳米管和石墨烯在应用中具有很多相似之处, 表面基团对它们摩擦的影响均受到了研究者的关注. Wal等^[4]发现表面氟化纳米管摩擦系数低至0.002—0.07, 指出表面改性的碳纳米管作为固体润滑剂具有广阔的应用前景. 石墨烯氟化后情况则有所不同, Kwon等^[5]的实验和理论结果表明石墨烯在表面氟化后摩擦力增大. Ko等^[6]指出石墨烯表面氢化、氟化和氧化后均具有较大的摩擦力. Dong等^[7]认为氢化石墨烯摩擦力升高的原因是氢化导致表面的原子粗糙度增大. Li等^[8]研究了碳纳米管端帽与基底垂直接触的情况, 结果表

明碳纳米管所受的摩擦力随界面间羟基含量的增加而增大. Wang等^[9]采用密度泛函理论 (density functional theory, DFT) 研究了氧化石墨烯的层间滑移行为, 结果表明界面间氢键的形成大大增加了界面间的静摩擦力. Chen等^[10]指出摩擦力随滑动速度的变化取决于界面的化学性质, 表面接枝诸如—OH, —COOH和—NH²等基团后能够形成氢键网络, 摩擦力随着滑动速度的增加而减小. Zheng等^[11]的结果表明若石墨烯在Ge(111)基体上排列适当, 即使在氟化或氧化之后, 石墨烯的摩擦力也能够保持在极小的水平.

摩擦过程总是伴随着能量的转移和耗散, 一些学者对此做了深入研究. 对于纳米碳材料, 如Eckstei等^[12]研究了掺杂碳纳米管的能量耗散; Kim等^[13]指出随着温度升高, 纳米石墨谐振器的能量耗散增加; Hu等^[14]综述了原子尺度摩擦的模型, 讨论了能量耗散的机理, 并分析了多层石墨烯能量耗散的具体过程. 一些研究者也探讨了能量耗散的影响因素. Wang等^[15]采用一维Prandtl

* 国家自然科学基金 (批准号: 51475039, 51405337) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: lirui@ustb.edu.cn

Tomlinson(P-T)模型,研究了原子尺度摩擦的能量转移和耗散,指出在黏滑运动过程中积累的能量并不总是完全耗散.考虑到声子能量耗散的事实,动摩擦不仅取决于界面性质,也取决于固体中体积原子的性质. Kajita 等^[16]通过实验和模拟比较了不同同位素单晶金刚石的动力学摩擦,观察到¹³C金刚石的摩擦力比¹²C金刚石的约小3%,这表明¹³C金刚石摩擦力更小的原因在于原子质量对声子能量耗散的抑制. Cannara 等^[17]测量了表面接枝氢、氧的单晶金刚石和硅的摩擦力,结果表明接枝氢的表面具有更高的摩擦力,并指出表面振动频率的改变将影响摩擦力.

上述研究工作解释了界面基团影响纳米碳材料摩擦特性的原因,分析了影响能量耗散的因素,但目前的工作中对碳纳米管接枝羟基后摩擦特性变化的研究较少,并且从未从声子耗散的角度深入分析羟基影响界面能量耗散的过程.本文采用分子动力学模拟研究了界面接枝羟基后碳纳米管在硅基底上摩擦力、能量和声子态密度的变化,从声子

耗散的角度解释了界面羟基影响碳纳米管摩擦的机理.

2 模型和方法

本文的模型由单壁碳纳米管SWCNT(10, 10)和硅基底组成,如图1所示.模型(a)为理想模型,包括水平取向的碳纳米管和硅基底;在模型(b)中,仅硅基底接枝了羟基;在模型(c)中,碳纳米管和硅基底均接枝了羟基.羟基和碳原子、硅原子之间以化学键的形式结合,其结合力比物理吸附力强,可以防止羟基脱附^[18].碳纳米管的直径为1.356 nm,硅基底在 x, y 方向上的尺寸分别为8.01 nm和7.98 nm,硅基底底部原子固定以近似模拟大块硅片.碳纳米管羟基含量指羟基与碳纳米管中碳原子数目之比,硅基底羟基含量指羟基与硅基底中最上层硅原子数目之比.模型在 $x[100], y[010]$ 方向均采用周期性边界条件.

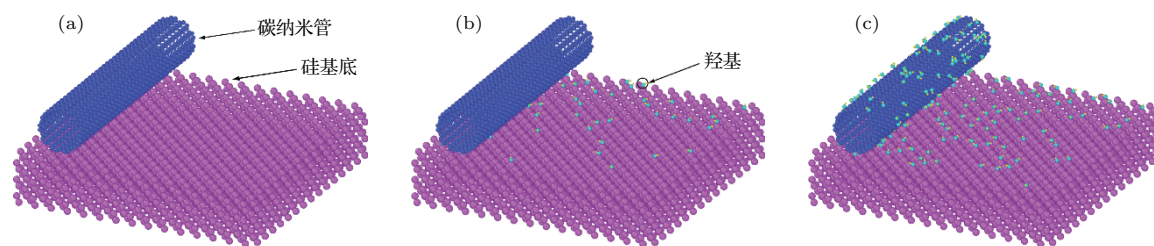


图1 碳纳米管和硅基底组成的模型 (a) 理想模型; (b) 硅基底接枝羟基; (c) 碳纳米管和硅基底均接枝羟基

Fig. 1. Illustration of simulation models: (a) Ideal model: carbon nanotube on Si substrate; (b) Si substrate grafted with hydroxyl groups; (c) Carbon nanotube and Si substrate both grafted with hydroxyl groups.

碳纳米管原子间的C—C成键作用采用AIREBO势^[19]描述,硅基底的原子间相互作用采用TERSOFF势函数^[20]描述,由于AIREBO势函数中未考虑O原子,Argyris等^[21,22]指出可采用OPLS_AA力场^[23]描述羟基改性后的体系中界面上Si—O—H, C—O—H之间的相互作用.碳纳米管与硅基底间仅存在范德瓦耳斯力作用,采用12-6 Lennard-Jones势^[24]描述,当碳纳米管和硅基底均接枝羟基时会形成氢键,氢键作用由DREILDING力场^[25]描述.

模拟系综为正则系综(NVT),体系温度控制在300 K,采用广义Langevin方程控制温度,动力学方程的数值积分采用Velocity-Verlet算法,计算步长为1 fs.采用LAMMPS^[26]实现分子动力学模拟过程.在模拟中首先进行能量最小化,随后使体系

弛豫100 ps至稳定,之后给碳纳米管一个恒定的速度使其在硅基底上沿运动方向匀速运动.

3 结果与讨论

3.1 界面接枝羟基对碳纳米管摩擦行为的影响

界面接枝羟基对碳纳米管所受的摩擦力产生了重要影响.图2显示了接枝不同比例的羟基时碳纳米管所受的侧向力.为了更清晰地对比显示各条曲线,图2中对侧向力数据进行了曲线拟合.可以看出,与模型(a)(即图中Ideal对应的曲线)和模型(b)(即图中0%/10%对应的曲线)相比,模型(c)(即图中5%/5%, 5%/10%, 10%/10%, 10%/20%对应的曲线)中界面均接枝羟基后,碳纳米管所受的侧

向力显著增大, 并且侧向力的起伏随着接枝羟基基数的增加而增大. 接枝不同比例的羟基后界面的平均摩擦力及平均氢键数目如图3所示, 可以看出平均摩擦力随羟基基数的增加而逐步变大; 界面间的平均氢键数量与摩擦力呈现相同趋势, 表明界面氢键数量与摩擦力紧密相关. Chen等^[10]指出氢键作用对界面摩擦力的影响明显, 本文的结果与其结论一致.

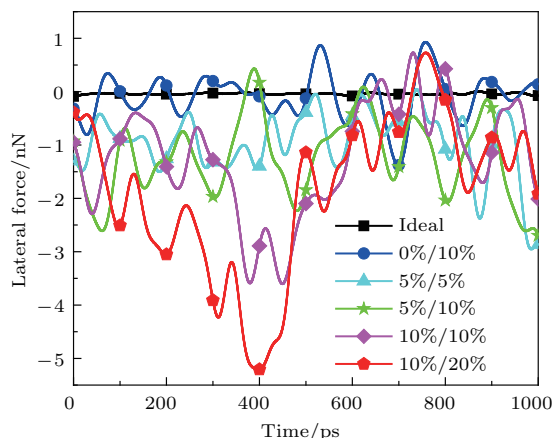


图2 碳纳米管所受的侧向力

Fig. 2. Lateral force on carbon nanotube.

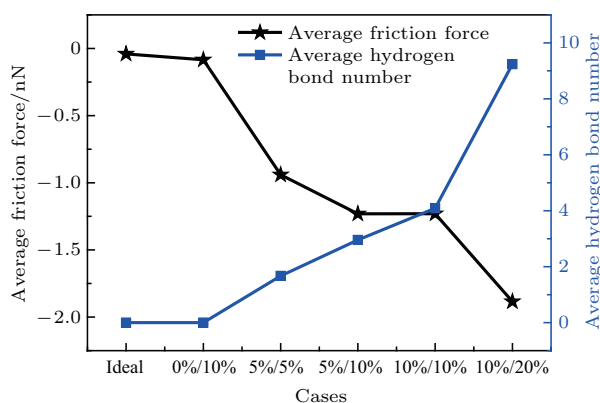


图3 接枝不同比例羟基时, 界面的平均摩擦力和平均氢键数目

Fig. 3. Average friction force and average hydrogen bond numbers between interfaces when grafted with different hydroxyl group ratio.

本文也研究了界面接枝羟基后, 碳纳米管的手性角和直径对摩擦的影响. 图4(a)显示了直径近似、不同手性角时单位长度碳纳米管所受的平均摩擦力, 其中SWCNT(11,9), SWCNT(12,8), SWCNT(13,7), SWCNT(14,6), SWCNT(15,0)的摩擦力类似, 但SWCNT(10,10)的摩擦力比其他的摩擦力大, 其原因在于SWCNT(10,10)为扶手椅型, 碳原子在轴向规则排列, 与理想的硅基底表面易形成摩尔纹结构, 界面间相互作用更

强. 不同直径时单位长度碳纳米管所受的平均摩擦力如图4(b)所示. 可以看出, SWCNT(7,7)所受的平均摩擦力最小, SWCNT(10,10), SWCNT(15,15)和SWCNT(20,20)所受的摩擦力类似, SWCNT(25,25)所受的摩擦力最大. 即直径对摩擦力有一定的影响, 摩擦力会随直径的增加而增大. 其原因在于随着碳纳米管直径的增大, 碳纳米管底部受基底的吸引而形成平台, 导致其与硅基底间的接触面积增大, 进而引起摩擦力的增加.

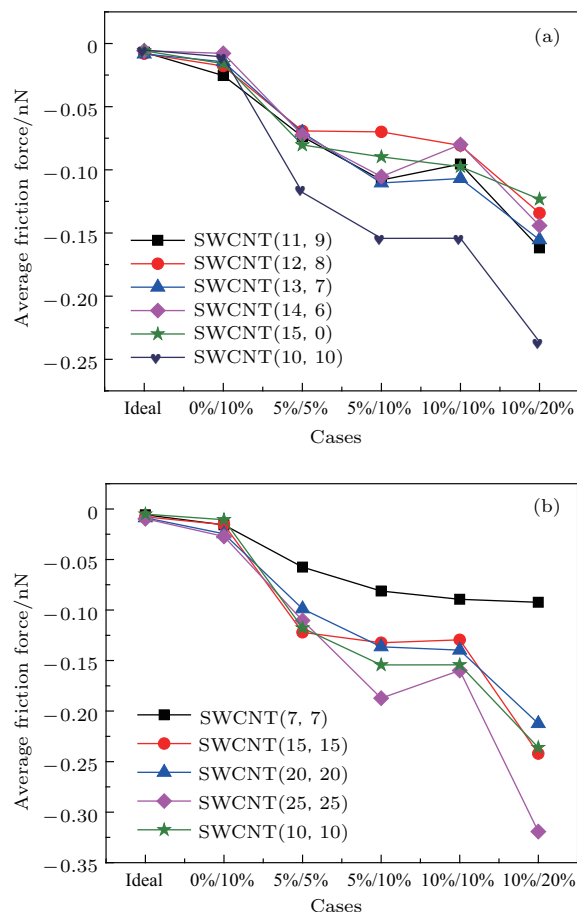


图4 单位长度碳纳米管所受的平均摩擦力 (a) 不同手性角条件下; (b) 不同直径条件下

Fig. 4. Average friction force on carbon nanotube per unit length: (a) Different chiral angles; (b) different diameters.

3.2 界面接枝羟基对体系能量耗散的影响

为了观察体系的能量耗散情况, 我们统计了接枝不同比例的羟基时体系总能量的变化, 如图5所示. 可以看出, 当碳纳米管接枝羟基的比例相同时, 体系总能量基本相同, 硅基底接枝羟基的比例对体系总能量影响较小. 当碳纳米管接枝羟基的比例不同时, 总能量则存在较大差异, 如碳纳米管接枝

羟基比例为10%与5%时总能量差值达470 eV. 总体来看, 体系总能量的变化趋势与平均摩擦力具有相似性, 即随着接枝羟基比例的增加而增大. 对于某一具体的体系, 其总能量在模拟过程中基本保持稳定.

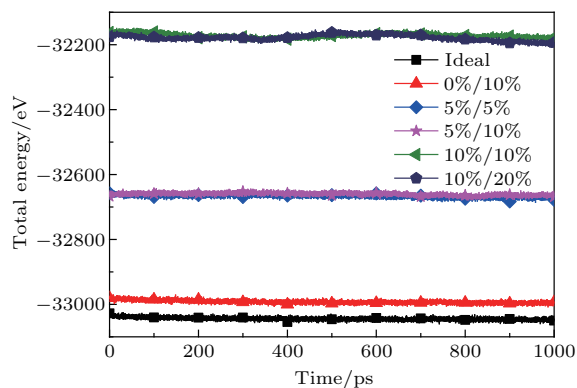


图5 接枝不同比例的羟基时体系的总能量

Fig. 5. Total energy of the simulation system when grafted with different hydroxyl group ratio.

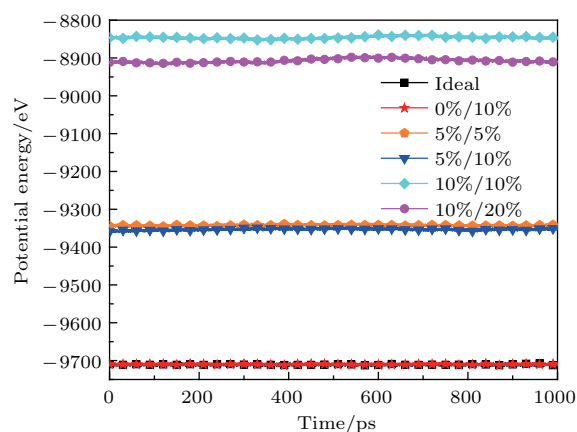


图6 接枝不同比例的羟基时碳纳米管的势能

Fig. 6. Potential energy of carbon nanotube when grafted with different hydroxyl group ratio.

接枝不同比例的羟基时, 碳纳米管的势能变化如图6所示, 与理想模型(即图中的Ideal模型)以及仅硅基底接枝羟基的模型(即羟基比例为0%/10%的模型)相比, 界面均接枝羟基后碳纳米管的势能明显增大. 碳纳米管的势能随其接枝羟基比例的增加而增大, 但当碳纳米管接枝羟基比例相同、硅基底接枝羟基比例不同时, 碳纳米管的势能随基底接枝羟基比例的增大而减小; 当界面接枝羟基比例为10%/10%和10%/20%时, 这一趋势表现的更为明显. 其原因在于界面间的相互作用随基底接枝羟基数目的增加而增强, 如界面氢键数量增加. 本文对不同手性角、不同直径碳纳米

管的势能和总能量也进行了统计分析, 其规律与SWCNT(10,10)相同.

为了探讨界面接枝羟基影响摩擦和能量耗散的深层原因, 我们对体系声子态密度的变化进行了分析. 体系的振动信息是声子态密度研究的基础, 计算时使用速度自相关函数法提取体系振动信息并进一步做频谱分析. 这种方法由Dickey等^[27]在1969年通过理论推导提出, 其基本原理为: 体系在稳态振动时, 其速度自相关函数和振动谱互为Fourier变换/反变换. 本文选取相应特征时间点并输出当时1 ps范围内的原子坐标与速度信息, 利用速度自相关函数法研究体系的振动并提取振动信息做频谱分析, 比较不同模型及不同状态的振动态密度分布.

接枝不同比例的羟基时, 对碳纳米管的所有原子进行统计得到其声子态密度如图7所示. 可以看出, 接枝不同比例的羟基, 其声子态密度存在较大的差异, 理想模型和羟基比例为0%/10%时声子态密度基本相同(如图7(a)、图7(b)所示), 羟基比例为5%/5%和5%/10%(如图7(c), (d)所示), 10%/10%和10%/20%时的声子态密度比较相似(如图7(e), (f)所示), 其原因是碳纳米管接枝羟基后羟基的振动在碳纳米管的声子态密度中开始体现, 碳纳米管接枝羟基比例相同则呈现出类似的结果.

当碳纳米管不接枝羟基和接枝羟基比例为0%/10%时, 如图7(a), (b)所示, 声子态密度图中存在9, 18和51 THz三个振动峰. 因为此时碳纳米管均未接枝羟基, 所以可以确定这三个振动峰为碳纳米管的固有振动峰. Dresselhaus等^[28]指出SWCNT的拉曼光谱中环呼吸振动峰(radial breathing mode, RBM)、无规振动峰(D峰)、剪切振动峰(G峰)的波数分别为180, 1350和1582 cm^{-1} , 根据 $k = f/c$ (式中 k 为波数, f 为频率, c 为光速), 计算得到对应的频率分别为5.40, 40.47和47.43 THz, 其他谱线在SWCNT的拉曼光谱中也会出现, 如环呼吸振动的倍频峰(2RBM)^[29]. 拉曼光谱中D峰是缺陷和有序度的反映, G峰是有序度的反映, 由于本文计算使用的为理想的SWCNT, 应该不存在D峰, 或者D峰非常微弱. 对比模拟的振动峰, 可以看出RBM, G峰出现了大约4 THz的频移; D峰峰值不明显, 18 THz时为2RBM. 这一结果表明计算得到的声子态密度与拉曼光谱存在良好的对应性.

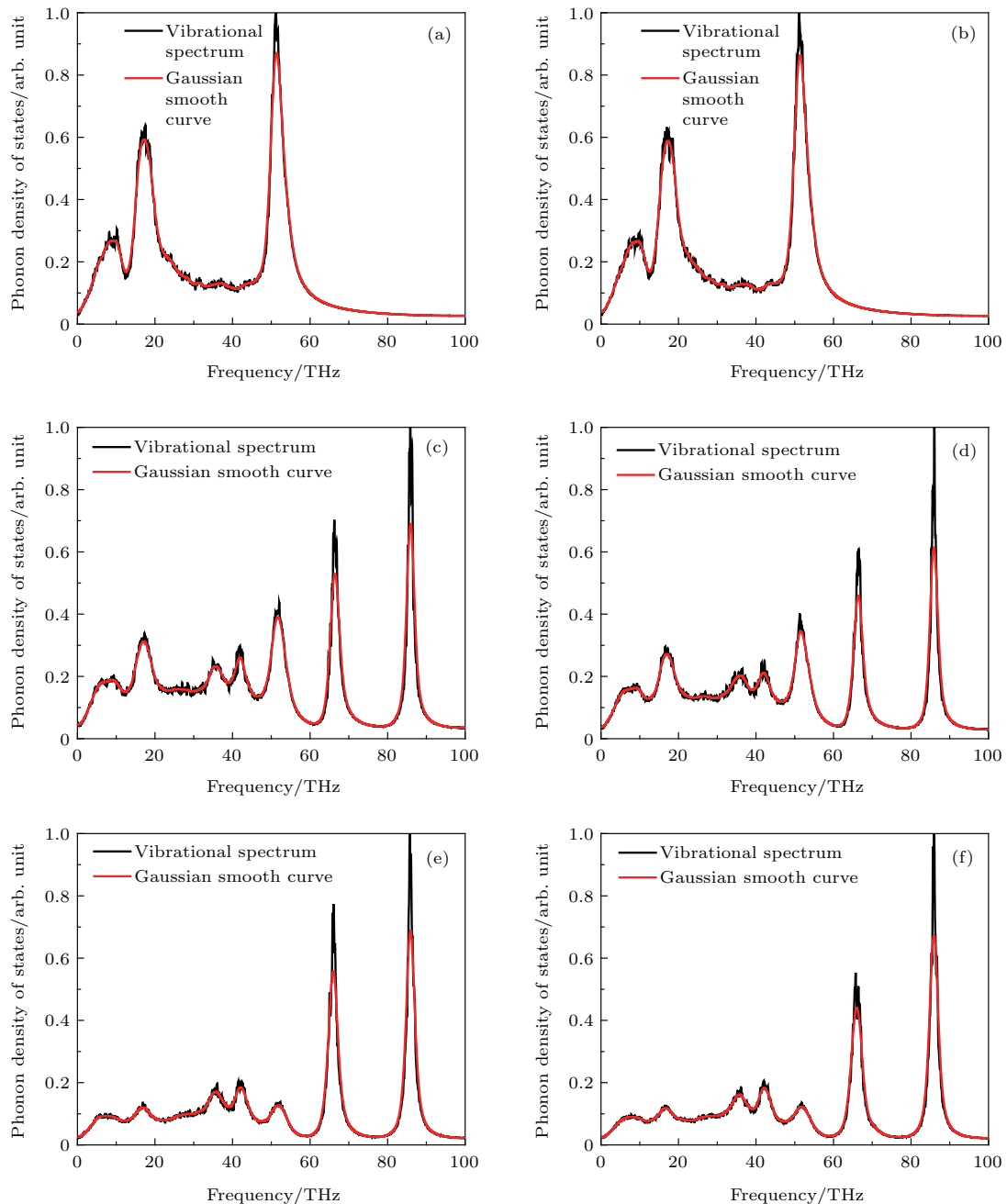


图7 接枝不同比例的羟基时, 碳纳米管的声子态密度图谱 (a) Ideal; (b) 0%/10%; (c) 5%/5%; (d) 5%/10%; (e) 10%/10%; (f) 10%/20%

Fig. 7. Phonon density of states of carbon nanotube when grafted with different hydroxyl groups ratio: (a) Ideal; (b) 0%/10%; (c) 5%/5%; (d) 5%/10%; (e) 10%/10%; (f) 10%/20%.

羟基的引入对碳纳米管晶格振动产生了调制, 对碳纳米管振动模态存在较大影响. 如图7(c)—(f)所示, 引入羟基以后碳纳米管声子态密度出现了37, 43, 67, 86 THz四个新的振动峰, 这四个振动峰即为羟基的振动峰, 并且羟基振动峰成为主要振动峰. 随着羟基比例的增加, 碳纳米管固有频率处峰值降低. 其原因在于碳纳米管接枝羟基后, 碳原子和氧原子形成共价键, 并且氧原子质量较大, 其振动对碳原子的振动扰动较大, 使碳纳

米管固有的晶格振动受到抑制, 因此碳纳米管固有频率处峰值降低. 由于氢原子质量比较小, 且氢原子不和碳原子直接接触, 因此对碳纳米管的振动影响较小. 随着羟基比例的增加, 37和43 THz频率处峰值降低, 因此这两个峰值是由氧原子振动引起的, 原因是羟基增加以后, 碳原子和氧原子形成的共价键增多, 它们之间相互抑制, 导致氧原子振动峰值降低. 当碳纳米管接枝羟基比例由5%变为10%时, 氢原子数目变化较小, 67和86 THz处峰值

随羟基比例的变化不明显, 可以推断此处的振动峰由氢原子引起.

声子态密度曲线所覆盖区域代表了所激发声子数目的多少, 声子态密度大, 体系耗散的内能多. 曲线峰值及平稳过渡段的升高和降低代表了模型激发出该频率声子数目的增加与减少. 碳纳米管接枝羟基后, 从声子态密度的变化可以观察能量耗

散方式的变化. 如图 7(c)—(f) 所示, 随界面接枝羟基的增加, 碳纳米管原有振动峰的峰值降低, 羟基振动峰逐渐成为主要振动峰, 即碳纳米管中的能量耗散方式由碳纳米管的振动逐渐向羟基的振动转变. 当碳纳米管接枝羟基的比例达到 10% 时, 通过羟基耗散能量成为了碳纳米管中能量耗散的主要方式.

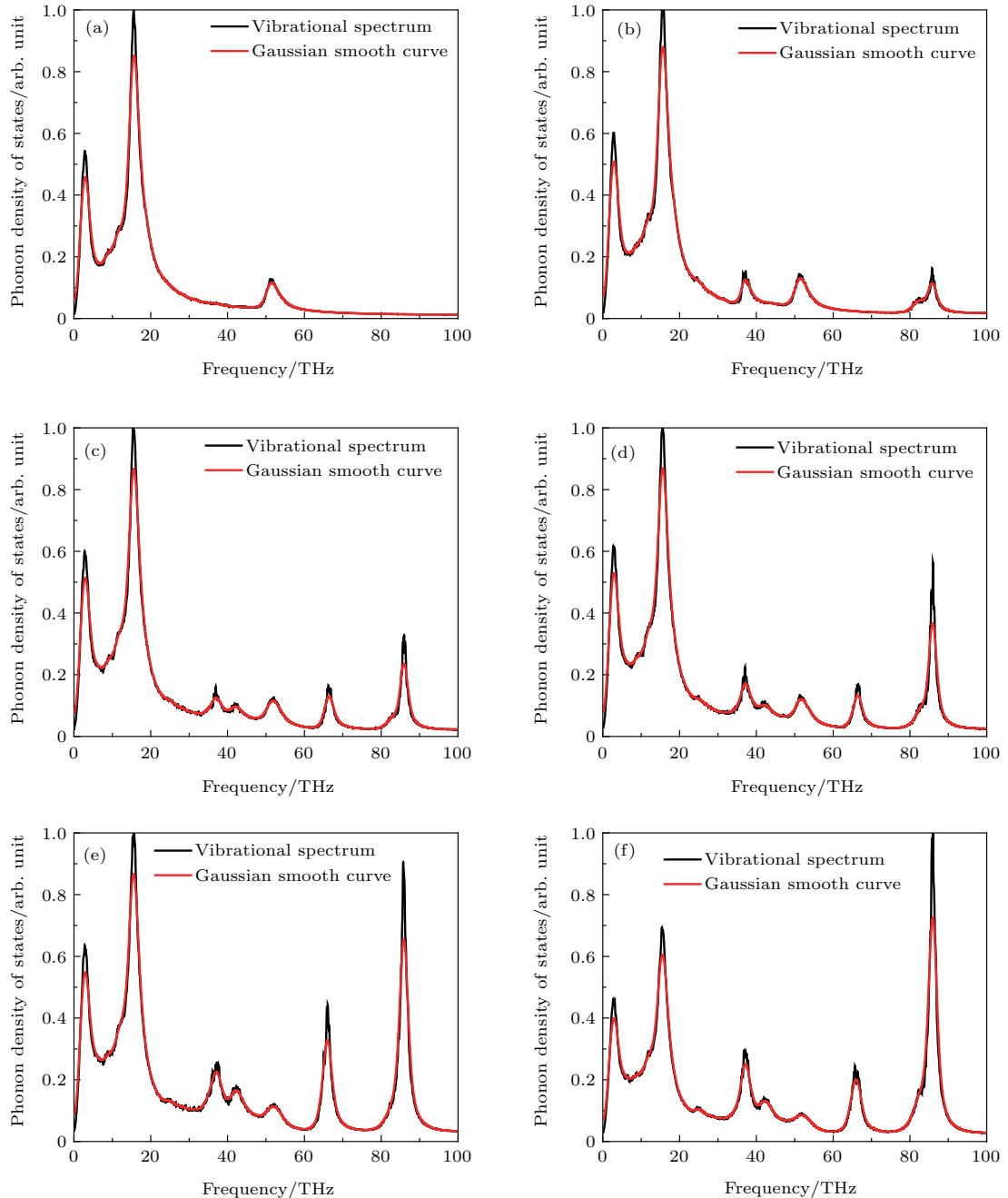


图 8 接枝不同比例羟基时, 整个体系的声子态密度图谱 (a) Ideal; (b) 0%/10%; (c) 5%/5%; (d) 5%/10%; (e) 10%/10%; (f) 10%/20%

Fig. 8. Phonon density of states of the simulation system when grafted with different hydroxyl group ratio: (a) Ideal; (b) 0%/10%; (c) 5%/5%; (d) 5%/10%; (e) 10%/10%; (f) 10%/20%.

体系的声子态密度等于体系各部分声子态密度之和, 硅基底及其接枝羟基的声子振动模态在整个体系的声子态密度中可以体现, 因此此处给出了整个体系声子态密度的变化, 如图8所示. 接枝

不同比例的羟基时整个体系图谱均存在碳纳米管的三个固有振动峰, 如图8(a)所示. Hart等^[30]指出硅的拉曼光谱单峰在 520 cm^{-1} 附近, 转换成频率为 14.90 THz 附近, 因此频率约 18 THz 的峰值为

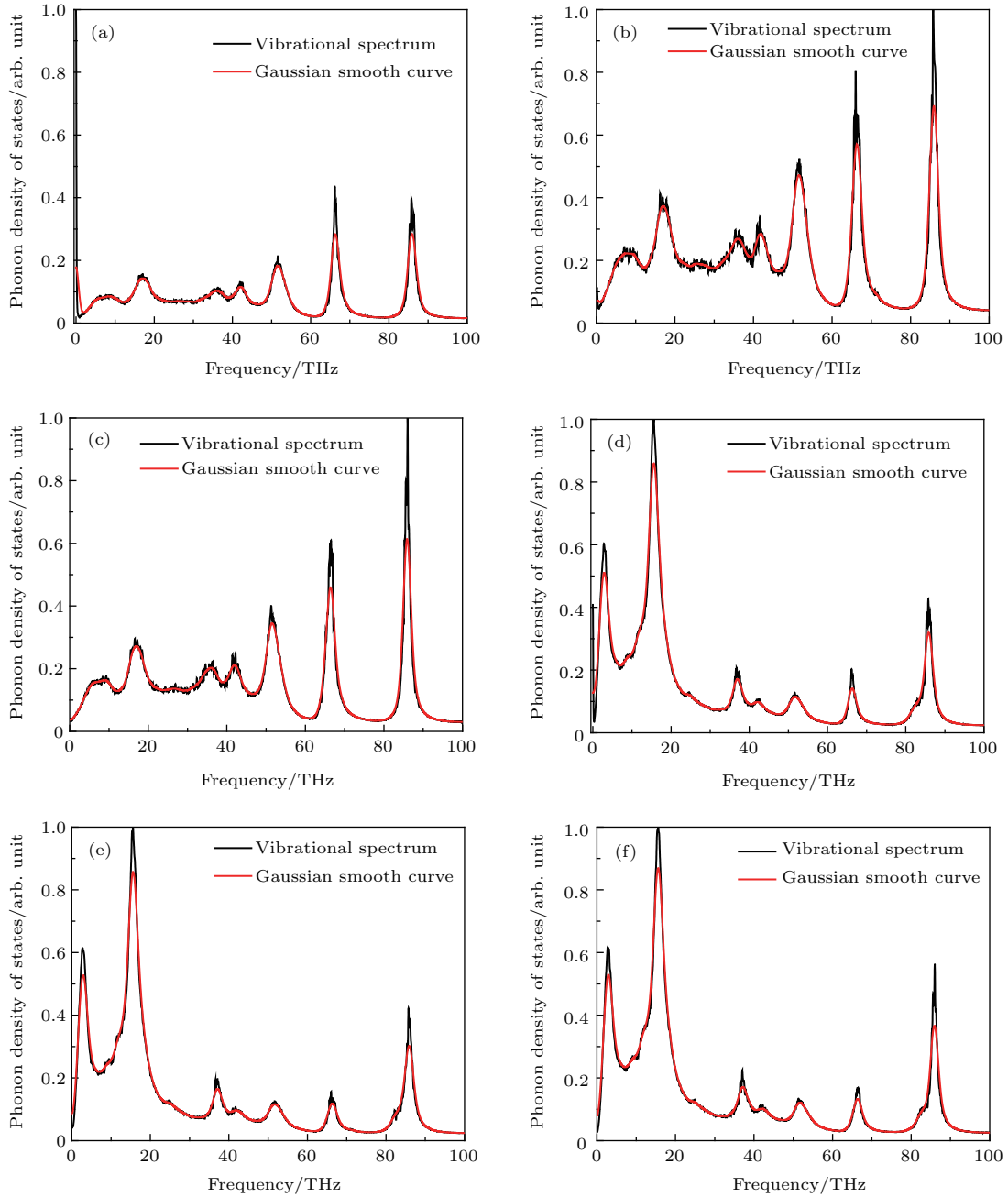


图9 体系接枝羟基比例为5%/10%时, 不同阶段的声子态密度图谱, 其中(a)–(c)为接枝羟基碳纳米管的声子态密度, (d)–(f)为整个体系的声子态密度 (a) 碳纳米管未接触硅基底前的自由状态; (b) 弛豫阶段; (c) 碳纳米管在硅基底上运动; (d) 碳纳米管未接触硅基底前的自由状态; (e) 弛豫阶段; (f) 碳纳米管在硅基底上运动

Fig. 9. Phonon density of states at different stages when the hydroxyl group ratio is 5%/10% (a)–(c) are the phonon density of states of carbon nanotube grafted with hydroxyl groups, (d)–(f) are the phonon state density of the whole simulation system: (a) The free state before carbon nanotube contacts with Si substrate; (b) after relaxation; (c) carbon nanotube moves on the Si substrate; (d) the free state before carbon nanotube contacts with Si substrate; (e) after relaxation; (f) carbon nanotube moves on the Si substrate.

碳纳米管的2RBM与硅振动峰的叠加. 因为体系中硅的数量很多, 此频率处的振动峰最为显著. 图8(c)—(f)中其他峰为羟基的振动峰, 频率与图7中类似. 从图8(c)到图8(f), 体系接枝羟基的数目逐渐增加, 羟基引起振动峰的峰值逐渐增大. 图8(c)和图8(d)相比, 硅基底接枝羟基数目增加, 37和86 THz的振动峰有明显的增大, 其他峰值变化不大; 而图8(e)和图8(f)相比, 随着羟基数目增加, 后者除37和86 THz的振动峰有增加外其他频率振动峰均明显降低, 峰值的降低是由于接枝羟基数目较多而导致碳纳米管和硅基底的晶格振动受到了抑制. 从图8(a)—(f)可明显看出, 随着接枝羟基比例的增加, 羟基振动占整体能量耗散的比例越来越大, 当界面接枝羟基比例为10%/20%时, 能量耗散的主要方式由碳纳米管和硅基底的振动转变为界面羟基的振动.

此外, 图8(c)—(f)也显示, 随着体系接枝羟基数目的增加, 羟基振动对应的声子态密度峰逐渐增大, 声子态密度曲线所覆盖区域变大, 能量耗散增加. 由图5、图6可以看出体系的总能量随着体系接枝羟基比例的增加而增大, 碳纳米管的势能也随碳纳米管上接枝羟基比例的增大而增大, 但随着硅基底上接枝羟基比例的增大而减小. 综合比较图5、图6、图8可以看出, 总体来看, 体系接枝羟基的比例和总能量直接相关, 总能量大时体系的能量耗散也大. 但接枝羟基比例为10%/20%和10%/10%时情况则有所不同, 10%/20%体系接枝的羟基比例比10%/10%体系的更高, 但图8(f)中碳纳米管对应的振动峰降低, 原因是由于界面作用增强, 碳纳米管的势能降低, 这说明碳纳米管的能量耗散情况与体系整体的能量耗散存在差异.

我们以羟基比例为5%/10%的体系为例, 探讨接触和剪切运动对能量耗散的影响, 如图9所示. 与碳纳米管未接触硅基底前(图9(a))相比, 碳纳米管在硅基底上运动时, 碳纳米管声子态密度(图9(c))的峰值均有明显的降低, 且低频振动峰消失; 碳纳米管在硅基底上运动时, 与碳纳米管未接触硅基底前(图9(d))相比, 整个体系的声子态密度图谱(图9(f))中氢原子引起的86 THz振动峰增大, 同样低频振动峰也消失. 其原因可归结为当碳纳米管和硅基底接触后, 由于界面羟基间的相互作用, 原子的振动状态发生了变化, 整体表现为碳纳米管上羟基的振动减弱, 硅基底上氢原子的振动增加. 弛豫阶段的声子态密度(图9(b), (e))与运动阶

段的差别不大, 这表明碳纳米管和硅基底从未接触到接触对能量耗散的影响比剪切运动更大.

4 结 论

本文采用分子动力学模拟研究了界面接枝羟基对碳纳米管摩擦和能量耗散方式的影响, 得到了以下结论:

1) 界面间引入羟基后, 由于界面间氢键的形成与断裂, 碳纳米管所受的摩擦力明显增加, 界面接枝羟基比例越高, 平均摩擦力越大. 手性角对摩擦力有一定影响, 扶手椅型碳纳米管的摩擦力比手性型和锯齿型大. 直径的增加会导致摩擦力增大, 原因是碳纳米管底部与硅基底间的接触面积增大.

2) 体系的总能量及碳纳米管的势能随羟基数目增加而逐步增加. 碳纳米管接枝羟基比例相同的情况下, 系统的总能量基本相同. 碳纳米管接枝羟基比例保持不变时, 碳纳米管的势能随硅基底接枝羟基比例升高而降低, 接枝羟基比例较高时这一现象更为明显, 原因是硅基底和碳纳米管之间的相互作用变大. 总体来看, 体系总能量大时体系的能量耗散也大, 但通过碳纳米管的振动耗散的能量也可能降低.

3) 界面接枝羟基后, 接枝羟基的碳纳米管和整个体系的声子态密度均出现羟基对应的振动峰. 随接枝羟基数目的增加, 羟基对应的振动峰峰值增大, 碳纳米管和硅基底的固有振动峰降低, 界面间能量耗散的主要途径由碳纳米管和硅基底的振动转变为界面间羟基的振动.

感谢密歇根大学彭庆博士和北京科技大学谢璐博士的讨论.

参考文献

- [1] Iijima S 1991 *Nature* **354** 56
- [2] Scarselli M, Castrucci P, de Crescenzi M 2012 *J. Phys.: Condens. Matter* **24** 313202
- [3] Liew K M, Wong C H, He X Q, Tan M J, Meguid S A 2004 *Phys. Rev. B* **69** 1738
- [4] van der Wal R L, Miyoshi K, Street K, Tomasek A, Peng H, Liu Y, Margrave J, Khabashesku V 2005 *Wear* **259** 738
- [5] Kwon S, Ko J H, Jeon K J, Kim Y H, Park J Y 2012 *Nano Lett.* **12** 6043

- [6] Ko J H, Kwon S, Byun I S, Jin S C, Park B H, Kim Y H, Park J Y 2013 *Tribol. Lett.* **50** 137
- [7] Dong Y L, Wu X W, Martini A 2013 *Nanotechnology* **24** 375701
- [8] Li R, Mi J X 2017 *Acta Phys. Sin.* **66** 046101 (in Chinese) [李瑞, 密俊霞 2017 物理学报 **66** 046101]
- [9] Wang L F, Ma T B, Hu Y Z, Wang H 2012 *Phys. Rev. B* **86** 125436
- [10] Chen J, Ratera I, Park J Y, Salmeron M 2006 *Phys. Rev. Lett.* **96** 236102
- [11] Zheng X, Lei G, Yao Q, Li Q, Miao Z, Xie X, Qiao S, Wang G, Ma T, Di Z, Luo J, Wang X 2016 *Nat. Commun.* **7** 13204
- [12] Eckstein K H, Hartleb H, Achsnich M M, Schöppler F, Hertel T 2017 *ACS Nano* **11** 10401
- [13] Kim S Y, Park H S 2009 *Appl. Phys. Lett.* **94** 101918
- [14] Hu Y Z, Ma T B, Wang H 2013 *Friction* **1** 24
- [15] Wang Z J, Ma T B, Hu Y Z, Xu L, Wang H 2015 *Friction* **3** 170
- [16] Kajita S, Tohyama M, Washizu H, Ohmori T, Watanabe H, Shikata S 2015 *Tribology Online* **10** 156
- [17] Cannara R J, Brukman M J, Cimatu K, Sumant A V, Baldelli S, Carpick R W 2007 *Sci.* **318** 780
- [18] Sun Y, Yang S, Chen Y, Ding C, Cheng W, Wang X 2015 *Environ. Sci. Technol.* **49** 4255
- [19] Brenner D W, Shenderova O A, Harrison J A, Stuart S J, Ni B, Sinnott S B 2002 *J. Phys.:Condes. Matter* **14** 783
- [20] Tersoff J 1988 *Phys. Rev. B* **37** 6991
- [21] Argyris D, Tummala N R, Striolo A, Cole D R 2008 *J. Phys. Chem. C* **112** 13587
- [22] Hughes Z E, Shearer C J, Shapter J, Gale J D 2012 *J. Phys. Chem. C* **116** 24943
- [23] Damm W, Frontera A, Tirado-Rives J, Jorgensen W L 1997 *J. Comput. Chem.* **18** 1955
- [24] Ruoff R S, Hickman A P 1993 *J. Phys. Chem.* **97** 2494
- [25] Mayo S L, Olafson B D, Goddard W A III 1990 *J. Phys. Chem.* **94** 8897
- [26] Plimpton S 1995 *J. Comput. Phys* **7** 1
- [27] Dickey J M, Paskin A 1969 *Phys. Rev.* **188** 1407
- [28] Dresselhaus M S, Dresselhaus G, Saito R, Jorio A 2005 *Phys. Rep.* **409** 47
- [29] Yin Y, Vamivakas A N, Walsh A G, Cronin S B, Unlü M S, Goldberg B B, Swan A K 2007 *Phys. Rev. Lett.* **98** 037404
- [30] Hart T R, Aggarwal R L, Lax B 1970 *Phys. Rev. B* **1** 638

Influences of hydroxyl groups on friction behavior and energy dissipation of carbon nanotube*

Wang Shi-Wei¹⁾ Zhu Peng-Zhe²⁾ Li Rui^{1)†}

1) (School of Mechanical Engineering, University of Science & Technology Beijing, Beijing 100083, China)

2) (School of Mechanical, Electronic and Control Engineering, Beijing Jiaotong University, Beijing 100044, China)

(Received 8 February 2018; revised manuscript received 15 March 2018)

Abstract

In this paper, the influences of hydroxyl groups between interfaces on friction and energy dissipation are investigated by molecular dynamics simulations. The simulation systems include horizontal oriented carbon nanotube and Si substrate. The hydroxyl groups are grafted only on the substrates or between interfaces in different cases. The simulation procedure is as follows. First, the structure of the simulation system is optimized through energy minimization. Then the relaxation is conducted to ensure the the system reaches an equilibrium state. Finally, carbon nanotube moves at a constant speed along the x direction on the Si substrate. The results show that the average friction on carbon nanotube increases significantly due to the formation of hydrogen bonds between interfaces. The number of hydrogen bonds between interfaces increases with hydroxyl group ratio increasing, which is similar to the trend of friction. The chiral angle of carbon nanotube has a certain effect on friction. The friction on the armchair carbon nanotube is larger than on other types of carbon nanotubes. The diameter has an obvious influence on friction. The friction between the interfaces increases with the diameter of carbon nanotube increasing. The reason is that carbon nanotube with a large diameter becomes flattened at the bottom, which leads to the increase of contact area between interfaces. New peaks appear in the phonon state density of simulation system due to the introduction of hydroxyl groups. With the increase of hydroxyl groups ratio, the values of corresponding peaks of hydroxyl groups in the phonon state density become higher, which indicates that the vibration of hydroxyl groups plays a more important role in energy dissipation. When the hydroxyl group ratio on the carbon nanotube and Si substrate reach 10% and 20% respectively, most energy dissipates through the vibration of hydroxyl groups rather than the vibration of the carbon nanotube and Si substrate. The total energy of the system increases with hydroxyl group ratio increasing, and the potential energy of carbon nanotube also increases with the augment of hydroxyl group ratio on the carbon nanotube. However, when the hydroxyl group ratio on the carbon nanotube remains constant, the potential energy of carbon nanotube decreases with the increase of hydroxyl group ratio on Si substrate. This phenomenon becomes obvious when the hydroxyl group ratio is high. The reason can be attributed to the larger interaction between the carbon nanotube and Si substrate. In general, the energy dissipation of the system is related to the total energy, but the energy dissipating through the carbon nanotube may become less with the increase of total energy.

Keywords: carbon nanotube, hydroxyl groups, friction, energy dissipation

PACS: 61.48.De, 68.35.Af, 63.22.-m, 02.70.Ns

DOI: 10.7498/aps.67.20180311

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 51475039, 51405337).

† Corresponding author. E-mail: lirui@ustb.edu.cn